

若手奨励賞受賞

トピックス

## X線透過型移相子

平野 馨一

高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所\*

## X-ray Transmission Phase Plate

Keiichi HIRANO

*Institute of Materials Structure Science, High Energy Accelerator Research Organization*

Recent advances in synchrotron-radiation research have led to an increased interest in the creation of various states of x radiation emitted from storage rings. In particular, recent studies of x-ray magnetic scattering and absorption have enhanced the request for circularly polarized x rays. To meet this request, three approaches have been taken. One is to use off-plane synchrotron radiation which is elliptically polarized as it is. A second approach is to design polarization-tunable insertion devices such as elliptical multipole wiggler and asymmetric wiggler. A third approach is to transform linear polarization of synchrotron radiation to arbitrary polarization by means of x-ray phase plates. Among these, the third approach is the most promising because it can produce well-defined polarization with high efficiency.

X-ray phase plates have been realized by utilizing dynamical diffraction, where the wave vectors for  $\sigma$  and  $\pi$  polarization states differ slightly inside the crystal due to the dispersion relation. To date, x-ray reflection phase plates which utilize the diffracted x rays by a crystal have been mainly studied. However, this kind of phase plates was not practical because the efficiency of polarization transformation was considerably low and control of polarization was difficult. To overcome these disadvantages we have developed x-ray transmission phase plates which utilize transmitted x rays by a crystal. In this article, the principle of the x-ray transmission phase plate is described and applications to x-ray magnetic circular dichroism (XMCD) and non-resonant x-ray magnetic diffraction are reported.

## 1. はじめに

偏光は光の基本的な性質の一つである。そして、光の偏光を変える働きをする光学素子が移相子である。可視光では昔から、雲母、水晶などが移相子として広く利用されてきた。それに対して、X線の波長領域 ( $\lambda < 0.3$  nm) においては、つい最近まで十分実用に耐えうるような移相子は存在しなかった。

移相子は、結晶中での複屈折を利用する。ところがX線の場合、物質中を通過してもほとんど複屈折を生じない<sup>1)</sup>。その例外が、X線が完全に近い結晶に入射して回折する場合である。このときX線は結晶中で多重散乱を受け、その影響で複屈折を生じる。この現象を利用することにより、X線の移相子をつくることができる。

これまで様々なタイプのX線移相子が開発されてきた

が、それらは反射型と透過型の2種類に大別される<sup>2)</sup>。反射型では結晶で回折されたX線を利用するのに対して、透過型では透過X線を利用する。歴史的には、反射型の方が先に開発され<sup>3-8)</sup>、磁気コンプトン散乱の実験などに利用された<sup>9-12)</sup>。しかし、反射型移相子には、偏光の変換効率が数%程度と低いうえに偏光の制御も困難といった欠点があり、あまり実用的ではなかった。反射型移相子が抱えていた問題点を克服するために、筆者はこれまで透過型移相子の研究に取り組んできた<sup>13-19)</sup>。幸いなことにこの努力は実を結び、世界で初めて実用的な移相子を開発することができた。

本稿では、X線透過型移相子の原理と、最近行った応用実験について紹介する。

\* 高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所 物質科学第一研究系 〒305-0801 つくば市大穂 1-1  
TEL 0298-64-5649 FAX 0298-64-2801 e-mail hirano@ccpfmail.kek.jp

## 2. 原理

### 2.1 移相子

いま、平面波の光が  $z$  軸に沿って進む場合を考える。このとき、光の電場ベクトルは次のように  $x$  成分と  $y$  成分とに分解して書くことができる。

$$\mathbf{E} = \begin{pmatrix} E_x \exp(i\delta_x) \\ E_y \exp(i\delta_y) \end{pmatrix} \exp\{2\pi i(\omega t - kz)\} \quad (1)$$

ここで  $E_x$  と  $E_y$  は電場ベクトルの  $x$  成分と  $y$  成分の振幅、 $\delta_x$  と  $\delta_y$  は初期位相を表す。 $x$  成分と  $y$  成分との間の位相差を  $\Delta = \delta_y - \delta_x$  と定義する。図1のように、 $E_x = E_y$  の場合について考えると、 $\Delta = (2n+1/2)\pi \text{ rad}$  ( $n$  は整数) のときには電場ベクトルの先端は光に向き合う観測者から見て円周上を時計回りに回転するように見えるし(右回り円偏光)、 $\Delta = (2n-1/2)\pi \text{ rad}$  では反時計回りに回転するように見える(左回り円偏光)。また、 $\Delta = n\pi \text{ rad}$  では  $45^\circ$  傾いた直線上を単振動するように見える(直線偏光)。このように光の偏光は位相差  $\Delta$  によって様々に変化する。

移相子は、位相差  $\Delta$  を変えることによって偏光を変える働きをする。通常、移相子には複屈折を示す結晶が用いられる。任意の偏光は複屈折結晶を通過すると、二つの固有偏光に分解されて進む。各々の偏光に対する屈折率  $n_1$ ,

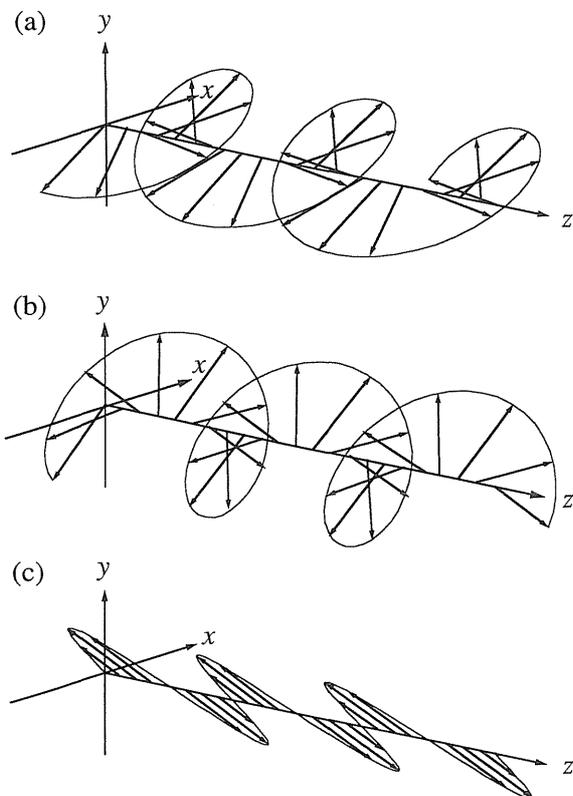


Figure 1. Polarization of light. (a) Right-handed circular polarization, (b) left-handed circular polarization and (c) linear polarization.

$n_2$  に差があると、この二偏光間には通過距離  $d$  に比例した光路差  $(n_1 - n_2)d$  が生じる。波長を  $\lambda$  とすると、生じる位相差は

$$\delta = 2\pi(n_1 - n_2) d / \lambda \quad (2)$$

となる。普通、位相差  $\delta$  を移相量と呼ぶ。また、移相量が  $\pi/2 \text{ rad}$  の移相子を  $1/4$  波長板、 $\pi \text{ rad}$  のものを  $1/2$  波長板と呼ぶ。 $1/4$  波長板は、直線偏光を円偏光に変換したり、逆に円偏光を直線偏光に変換するのによく利用される。放射光で移相子を使う場合、 $1/4$  波長板としての利用がメインになる。

### 2.2 X線透過型移相子

平面波の X 線が完全結晶に入射する場合について考える。入射 X 線が回折条件をほぼ満たすと、結晶中には X 線の波動場が形成される<sup>20)</sup>。結晶中では、多重散乱の影響により、散乱面に垂直な偏光成分 ( $\sigma$  偏光成分) と平行な偏光成分 ( $\pi$  偏光成分) の波動場の波数ベクトルは僅かに異なる。そのため、波動場が結晶中を伝播するにつれて、二つの偏光成分間に位相差が生じる。各々の波動場が結晶の裏面まで到達すると、合成されて透過 X 線を生じる。透過型移相子ではこの透過 X 線を利用する。

透過型移相子の性能は、移相量、 $\sigma$  偏光の透過率、 $\pi$  偏光の透過率の三つの物理量によって規定される。図2に計算例を示す。計算は、 $10 \text{ keV}$  の平面波 X 線が厚さ  $50 \mu\text{m}$  のシリコン(110)結晶に入射して  $220$  反射条件の近くで透過 X 線を生じる場合について行った。グラフの横軸  $\Delta\phi$  は、入射角の回折条件からのずれ、オフセット角を表す。透過率はブラッグ反射が生じる選択反射領域ではほぼゼロであり、この領域を離れるにしたがって一定の値に近づく。一方、移相量は選択反射領域の近くで急激に変化するのに対して、離れた点では緩やかに変化する。なお、この例では、結晶は  $\Delta\phi = \pm 6''$  の時に  $1/4$  波長板、 $\Delta\phi = \pm 3.4''$  の時に  $1/2$  波長板として機能する。

移相子に入射する X 線が平面波の場合、移相量は一定の値をとる。ところが、実際の実験条件では、入射 X 線は必ず有限の角度発散を持つ。そのため、移相量もそれに応じた広がりを持つことになり、その結果、出射 X 線の偏光はぼやけてしまう(偏光解消効果)。このような偏光解消効果を最小限に抑えるには、移相量が入射 X 線の角度発散に対して鈍感な領域、すなわち、回折条件から離れた角度領域で移相子を使用すればよい。このとき、移相量は近似的に次式で与えられる。

$$\delta \approx -\frac{\pi}{2} \left[ \frac{r_e^2 \text{Re}(F_h F_{\bar{h}}) \lambda^3 \sin(2\theta_B)}{\pi^2 V^2 \Delta\phi} \right] d \quad (3)$$

ここで  $r_e$  は古典電子半径、 $\lambda$  は波長、 $\theta_B$  はブラッグ角、

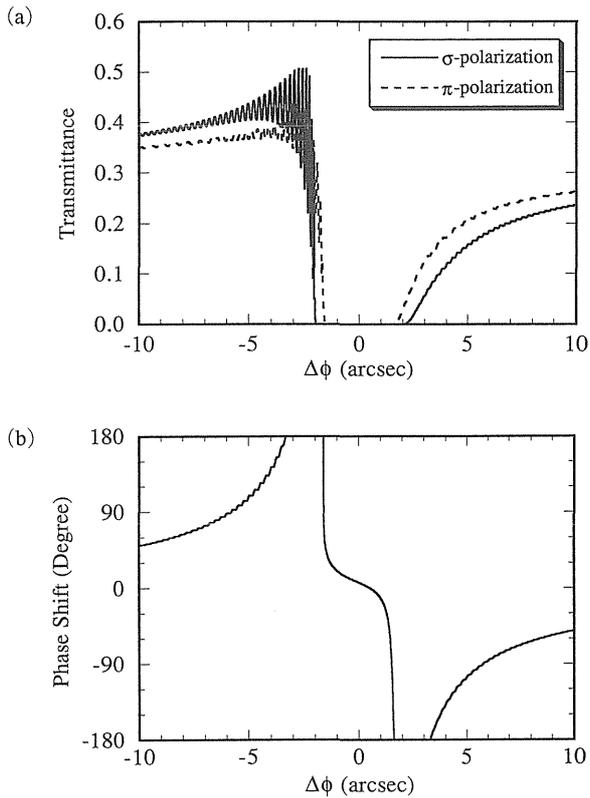


Figure 2. Calculated (a) transmittances of  $\sigma$  (solid lined) and  $\pi$  (dashed line) polarizations and (b) phase shift. Calculations were made for the transmitted x rays associated with the Bragg 220 diffraction at the Si(110) wafer of 50  $\mu\text{m}$  thickness. Incident beam energy is 10 keV.

$V$ は単位胞の体積,  $F_h$ と $F_k$ はそれぞれ $hkl$ 反射と $\bar{h}\bar{k}\bar{l}$ 反射の結晶構造因子,  $d$ は移相子中を通るX線の光路長を表す。なお, 透過率は $\sigma$ 偏光,  $\pi$ 偏光ともに

$$T = \exp(-\mu d) \quad (4)$$

で与えられる。ここで $\mu$ はX線の線吸収係数である。

### 2.3 X線透過型移相子の最適化

X線透過型移相子の性能を最適化することを考える。まず, 入射X線の角度発散による偏光解消効果を抑える必要がある。それには, 移相子結晶を厚くして, 所望の移相量が回折条件から離れた角度で生じるようにする。移相子結晶を厚くすると, X線の吸収の増大, すなわち, 偏光変換効率の悪化が新たな問題になるが, ダイヤモンド, ベリリウム, フッ化リチウムなどの吸収の小さい結晶を用いることでこの問題を緩和することができる。以上の議論は非常に大雑把ではあるが, とにかく, X線の吸収の小さい結晶を用い, その厚さを厚めに設計することで透過型移相子の性能を改善することができる。

図3にダイヤモンド結晶を用いた場合の計算例を示す。

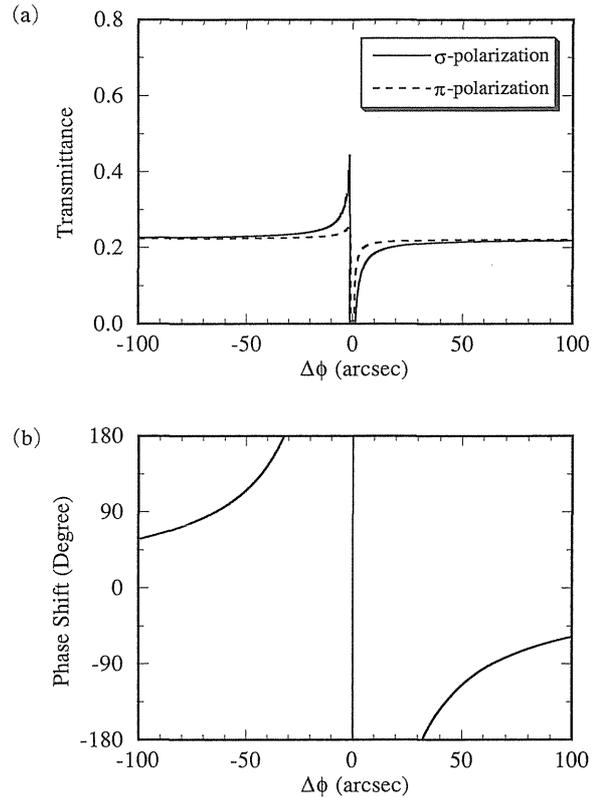


Figure 3. Calculated (a) transmittances of  $\sigma$  (solid lined) and  $\pi$  (dashed line) polarizations and (b) phase shift. Calculations were made for the transmitted x rays associated with the Bragg 220 diffraction at the diamond (110) crystal of 1 mm thickness. Incident beam energy is 10 keV.

計算は, 10 keVのX線が厚さ1mmの(110)結晶に入射して220反射条件近傍で透過X線を生じる場合について行った。このとき,  $90^\circ$ の移相量は $\Delta\phi = \pm 64''$ で生成され, そこでの透過率は $\sigma$ 偏光,  $\pi$ 偏光ともに23%である。仮に, 入射X線が $30''$ の角度発散を持つとすると,  $\Delta\phi = -64''$ の近辺で移相量は $74^\circ$ から $116^\circ$ にわたって分布することになる。実用上この程度の移相量のばけは, 高精度が必要な特別の場合を除いて許容される場合が多い。

### 3. X線偏光変換光学系

X線透過型移相子を用いると, 水平偏光の放射光を容易に任意の偏光に変換することができる。もっとも簡単な偏光変換光学系の例を図4に示す<sup>19)</sup>。この光学系は, 二結晶分光器と透過型移相子とからなる。放射光は, まず二結晶分光器で単色化され, 次に移相子で偏光を変換される。移相子は $\chi$ と $\phi$ の二つの回転軸を持つ回折計の上に, 回折に参与する逆格子ベクトルが $\phi$ 軸と直交するように置く。このとき, 水平偏光のX線が移相子に入射すると, 移相子の中で $\sigma$ 成分と $\pi$ 成分が $\sin\chi : \cos\chi$ の振幅比でコヒーレントに励起される。 $\sigma, \pi$ 成分間に生じる移相量は, 入射角の回折条件からのずれの角 $\Delta\phi$ によって制御さ

れる。したがって、 $\chi$  と  $\Delta\phi$  の二つの角度を調整することで、任意の偏光の X 線を生成することができる。

例として、円偏光を生成する場合を考える。放射光の水平偏光を円偏光に変換するには、移相子中で  $\sigma$  と  $\pi$  の偏光成分を同じ振幅で励起すること、 $90^\circ$  の移相量を生じさせること、の二つの条件を満たす必要がある。前者は  $\chi$  軸の角度を  $45^\circ$  にすることで、また、後者は  $\Delta\phi$  を適当に調整することで満たすことができる。

この光学系のテストを、物質構造科学研究所・放射光研究施設 (Photon Factory, 略称 PF) の BL-15C で行った。BL-15C は偏向電磁石からの放射光を利用する X 線実験ステーションであり、ビームラインには定位置出射型の二結晶分光器を備えている。実験では、シリコン(111)の二結晶分光器で取り出した波長  $0.192 \text{ nm}$  の X 線を光源から約  $30 \text{ m}$  離れたところにある実験ステーション内に導いたのち、スリットでビームのサイズを  $1 \text{ mm}$  (縦)  $\times$   $1 \text{ mm}$  (横) に絞った。このとき、スリットを通った X 線の発散角は  $9.6''$  (水平)  $\times$   $7.6''$  (垂直) となる。移相子には、厚さ  $1 \text{ mm}$  のダイヤモンド(001)結晶を用いた。移相子の角度は、 $\chi = 45^\circ$  としてから、ラウエケースの111回折条件をほぼ満たすように  $\phi$  軸を調整した。移相子のうしろに検光子を置いて透過 X 線の偏光を測ったところ、 $\Delta\phi = \pm 190''$  では円偏光、 $\Delta\phi = \pm 115''$  では垂直偏光ができていたことが確認された。なお、この実験では移相子を透過する X 線の透過率、すなわち、偏光の変換効率は  $6\%$  であった。

この光学系の最大の長所は、その単純さである。放射光

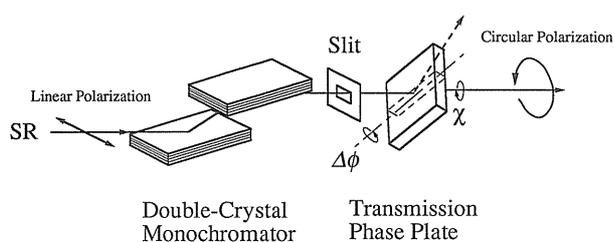


Figure 4. Polarization-tunable x-ray optics for synchrotron radiation. Incident beam is monochromated by a double-crystal monochromator and its polarization is transformed by a transmission phase plate.

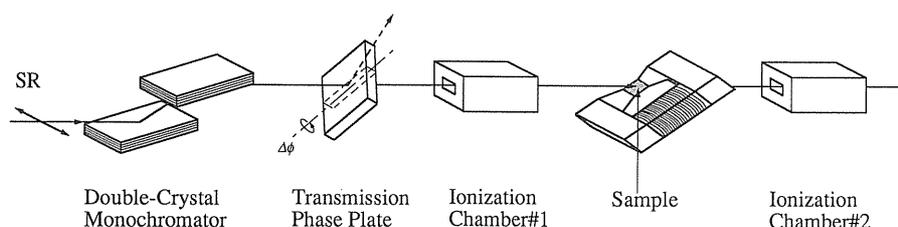


Figure 5. Experimental setup for measurement of XMCD spectra. Incident beam is monochromated by a double-crystal monochromator and transformed to circular polarization by a transmission phase plate. The monochromatic and circularly polarized x rays are incident upon a sample magnetized by an electromagnet. The intensities of the beam in front of and behind the sample are measured by ionization chambers.

実験施設のたいていの X 線ステーションは縦分散の分光器を備えているが、それらの既存のステーションでも  $40 \text{ cm} \times 40 \text{ cm}$  程度のスペースさえあれば、そこに移相子を設置して任意の偏光を利用することができるようになる。

この光学系の短所は、発散光に対して偏光の変換効率が低くなることである。事実、上の実験では偏光の変換効率は  $6\%$  しかない。これは、入射光の発散が大きくなるほど、偏光解消効果を抑えるために移相子を厚くする必要があるのである。逆に、入射光の発散が小さい場合には、移相子を薄くして高い変換効率を達成することができる。したがって、この光学系は SPring 8 などの第三世代リングのアンジュレーターと組み合わせたときに最大の威力を発揮する。

X 線移相子を利用した偏光変換光学系にはこれ以外にも様々なものがあり<sup>2)</sup>、発散光に対して効率良く偏光を変換できる光学系も実用化されている<sup>21)</sup>。実験の用途に応じて、最適な光学系を組み合わせることが大切である。

#### 4. 応用

X 線透過型移相子の登場により、放射光の偏光を簡単に制御できるようになった。すでに応用実験もいくつかなされており、移相子の用途が急速に拡大しつつある。ここでは、筆者が関わった実験の中から二つの例を紹介する。

##### 4.1 X 線磁気円二色性

X 線磁気円二色性 (XMCD) 実験には、円偏光成分を含んだ入射光が必要である。そのため、XMCD 研究の草創期においては、偏向電磁石からのオフ・プレーン光が利用された。その後、楕円マルチポールウィグラーなどの偏光可変挿入型光源の登場により、短時間で高精度の XMCD スペクトルを測定することが可能になった。しかし、偏光可変挿入型光源には、(i)輸送光学系によって偏光が崩れてしまう<sup>22)</sup>、(ii)ヘリシティーを高速に反転することが難しい、などの問題があった。これらの問題を解決するために注目されたのが、X 線移相子で水平偏光の放射光を円偏光に変換する方法であった。この方法では、試料の直前に移相子を配置するので他の光学素子による偏光の崩れはまったく生じない。また、ヘリシティーの反転も、

移相子の角度を僅かに変えるだけですむので、高速に行える。

X線移相子を初めて XMCD スペクトル測定に応用したのは、Giles らであった<sup>23)</sup>。彼らは、エネルギー分散型 EXAFS の分光計と X線透過型移相子とを巧みに組み合わせて、Gd の  $L_3$  吸収端 ( $E_0=7.525$  keV) 近傍でラウヴェス相の  $GdFe_2$  の XMCD スペクトルを測定した。これに対して筆者らは、定位置出射型二結晶分光器と X線透過型移相子とを組み合わせて、エネルギー走査法で XMCD スペクトルを測定することを試みた<sup>24)</sup>。

実験は PF の BL-15C で行った。実験配置を図 5 に示す。まず、シリコン(111)の定位置出射型二結晶分光器で単色 X 線を取り出した。次に、スリットでビームのサイズを  $1\text{ mm} \times 1\text{ mm}$  に絞った。このとき、スリットを通った X 線の発散角は  $9.6''$  (水平)  $\times 7.6''$  (垂直) となる。さらに、X線透過型移相子で水平偏光を円偏光に変換した。移相子には厚さ  $1.09\text{ mm}$  のダイヤモンド(001)結晶を用い、 $\chi$  と  $\phi$  の二つの回転軸を持つ回折計の上に載せた。円偏光を生成するために、 $\chi$  軸の角度を  $45^\circ$  に設定してから、ラウエケースの 111 回折条件をほぼ満たすように  $\phi$  軸の角度を調整した。偏光の変換効率は  $60\%$  であった。試料には、白金-鉄合金 (白金の含有量  $37.1\%$ ) を用いた。試料を入射光に対して  $45^\circ$  傾け、電磁石で試料表面に平行に磁場を印加した。試料に入射する X 線と透過する X 線の強度をイオン・チェンバーで測定した。

エネルギーを走査して XMCD スペクトルを測定するには、分光器と移相子とを連動させる必要がある。これは、そのためのプログラムを組むことにより、ソフトウェア的に実現した。この光学系の良いところは、エネルギーを走査してもビームの位置が動かないことである。これは、ビームの位置を変えない、という透過型移相子の特長に由来している。ビームの位置と方向を変えてしまう反射型移相子では、このようなわけにはいかない。

Pt の  $L_3$  吸収端 ( $E_0=11.565$  keV) 近傍で XANES と XMCD スペクトルを測定した。測定は  $100\text{ eV}$  の領域を  $1\text{ eV}$  刻みで行った。測定に要した時間はおよそ 4 時間であった。測定データを次式に代入して、 $\mu t$  と  $\Delta\mu t$  を計算した。

$$\text{XANES: } \mu t = [\ln \{I_0/I(\uparrow)\} + \ln \{I_0/I(\downarrow)\}] / 2 \quad (5)$$

$$\text{XMCD: } \Delta\mu t = \ln \{I_0/I(\uparrow)\} - \ln \{I_0/I(\downarrow)\} \quad (6)$$

ここで、 $I(\uparrow)$  は磁場を上流側に印加したときの透過強度、 $I(\downarrow)$  は下流側に印加したときの透過強度、 $I_0$  は入射ビーム強度を表す。結果を図 6 に示す。XMCD スペクトルの半値幅は約  $7\text{ eV}$  で、吸収端から高エネルギー側に  $10\sim 40\text{ eV}$  離れた領域に微細構造が現れている。この結果は、物質構造科学研究所の蓄積リング (Accumulation Ring, 略称 AR) の BL-NE1 で楕円マルチポールウィグラーを

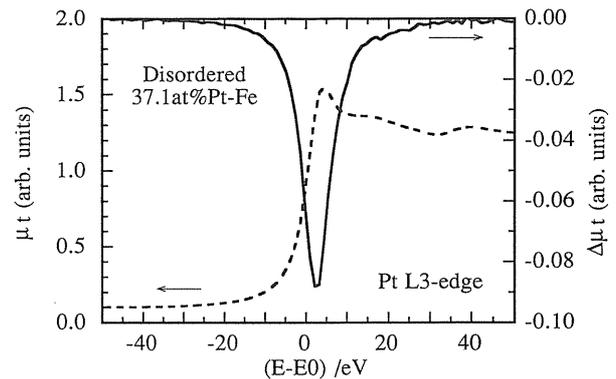


Figure 6. XMCD (solid line) and XANES (dashed line) spectra at the Pt  $L_3$ -edge in the disordered 37.1 at% Fe-Pt alloy.

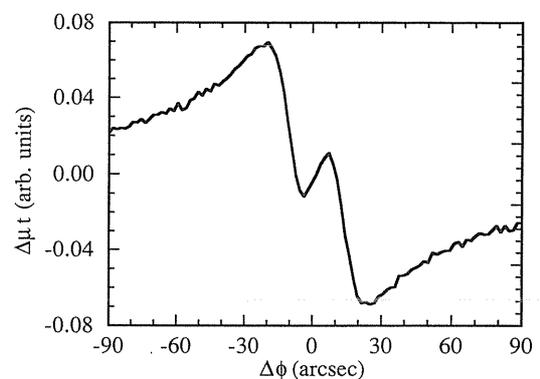


Figure 7. Offset-angle ( $\Delta\phi$ ) dependence of the XMCD signal.

使って測定した XMCD スペクトル<sup>25)</sup>と良く一致することが確認された。この結果は、定位置出射型分光器と X線透過型移相子とを組み合わせて、エネルギー走査法で XMCD スペクトルを測定する方法の有効性を示している。

図 5 の配置を用いて、透過型移相子の偏光可変性をデモンストレーションする実験を行った。入射 X 線のエネルギーを XMCD シグナルが最大になる  $E=E_0+2\text{ eV}$  に固定し、移相子のオフセット角  $\Delta\phi$  を変えながら XMCD シグナルの変化を追った。その結果を図 7 に示す。XMCD シグナルは入射 X 線の円偏光度に比例するから、グラフの縦軸は円偏光度を反映している。XMCD シグナルは、移相子のオフセット角に対して奇数関数的に変化している。 $\Delta\phi = \pm 20''$  で XMCD シグナルの大きさが最大になっているが、これはこの点で円偏光が生成されたことを表す。なお、 $\Delta\phi = -20''$  と  $\Delta\phi = +20''$  とで符号が逆転しているのは、偏光の回転方向が反転したためである。

#### 4.2 非共鳴 X 線磁気回折

平面波の X 線が、鉄などの強磁性体の単結晶に入射して回折する場合を考える (図 8)。結晶表面に平行に磁場を印加し、磁化方向と入射 X 線方向とのなす角を  $\alpha'$  とする。磁場を + 方向に印加したときの回折 X 線の強度を  $I_+$ ,

一方に印加したときの強度を  $I_-$  とすると、磁気効果の大きさは、

$$R = \frac{I_+ - I_-}{I_+ + I_-} \quad (7)$$

で定義されるフリップ比により表される。X線磁気回折の理論<sup>26)</sup>によると、フリップ比はブラッグ角が45°のとき最大になり、次式で与えられる。

$$R = \frac{\gamma}{n(k)} \frac{P_c}{1 - P_l} \{L(k)(\cos \alpha + \sin \alpha) + 2S(k) \sin \alpha\} \quad (8)$$

ここで、 $\gamma = \hbar\omega/mc^2$  ( $\hbar\omega$ は入射X線のエネルギー、 $mc^2$ は電子の静止エネルギー)、 $k$ は回折にかかわる逆格子ベクトル、 $P_l$ と $P_c$ は入射X線の直線偏光度と円偏光度、 $n(k)$ は電荷密度のフーリエ変換、 $L(k)$ と $S(k)$ は軌道およびスピン磁気モーメント密度のフーリエ変換を表す。この式から、 $\alpha$ の異なる2つの配置でフリップ比を測定すれば、軌道磁気モーメントとスピン磁気モーメントとを分離できることがわかる。もう一つ、この式で注目すべき点は、

$$f_p = \frac{P_c}{1 - P_l} \quad (9)$$

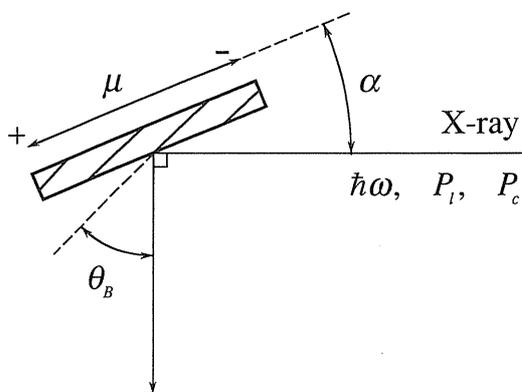


Figure 8. Schematic diagram of the non-resonant x-ray magnetic diffraction.

という偏光因子を含んでいることである。これは、試料に入射するX線の偏光を適当に調整してやれば、フリップ比をエンハンスできることを示している。

偏向電磁石からの放射光は、軌道面内では直線偏光、斜め上下方向では楕円偏光である。放射光の偏光は軌道面を見込む視斜角によって変化するので、視斜角を調整することでフリップ比をエンハンスすることができる<sup>27)</sup>。フリップ比をエンハンスするもう一つの方法として、移相子を使う方法がある。この方法の利点は、透過型の移相子を用いることにより、ビームの位置と方向を一定に保ったまま偏光を変えられる点である。ここでは、透過型移相子を用いてフリップ比をエンハンスする実験について紹介する<sup>28)</sup>。

実験はPFのBL-3C<sub>1</sub>で行った。実験配置を図9に示す。試料には鉄の(110)結晶を用いた。鉄の220反射のブラッグ角が丁度45°になるように、シリコン(111)の二結晶分光器で8.65 keVのX線を取り出した。次に、透過型移相子で放射光の偏光を調整した。移相子には厚さ0.5 mmのダイヤモンド(001)結晶を用い、 $\chi$ と $\phi$ の2つの回転軸を持つ回折計の上に乗せた。 $\chi$ 軸の角度を45°に設定してから、ラウエケースの111回折条件をほぼ満たすように $\phi$ 軸の角度を調整した。試料で回折されたX線 ( $E = 8.65$  keV) と鉄の蛍光X線 ( $K_\alpha$ 線は  $E = 6.4$  keV,  $K_\beta$ 線は  $E = 7.0$  keV) とを分離するために、検出器にSSDを用いた。移相子のオフセット角 $\Delta\phi$ を変えながら、フリップ比を測定した。

分光結晶のシリコンを111反射の角度 ( $\theta_B = 13.2^\circ$ ) に合わせると、分光器後のX線の直線偏光度は0.9920になる。このときのフリップ比の測定結果を図10(a)に示す。白丸は実験値、実線は理論値を表す。フリップ比は、移相子のオフセット角 $\Delta\phi$ と共に変化する。また、フリップ比は、 $\Delta\phi = -300''$ のときに最小値 $-3 \times 10^{-3}$ 、 $\Delta\phi = +300''$ のときに最大値 $+3 \times 10^{-3}$ をとる。 $R = \pm 3 \times 10^{-3}$ に相当する偏光因子は $f_p = \pm 8$ である。

次に、分光結晶のシリコンを333反射の角度 ( $\theta_B = 43.3^\circ$ ) に合わせて実験を行った。X線回折では45°のブラッグ角がいわゆるブリュースター角に相当する。したがっ

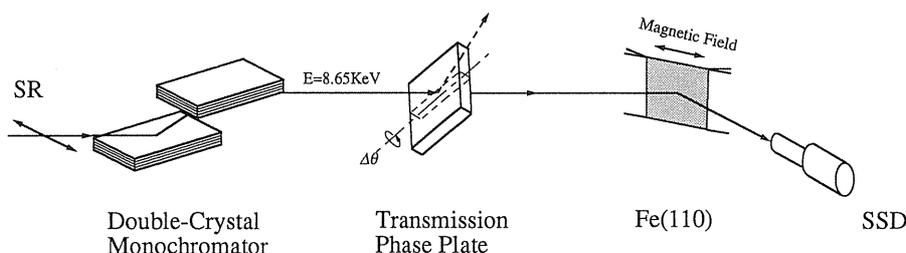


Figure 9. Experimental setup of non-resonant x-ray magnetic diffraction. Incident beam is monochromated by a double-crystal monochromator and its polarization is transformed by a transmission phase plate. The monochromatic and polarized x rays are incident upon a sample magnetized by an electromagnet. The diffracted beam intensity is measured by an intrinsic germanium solid-state detector.

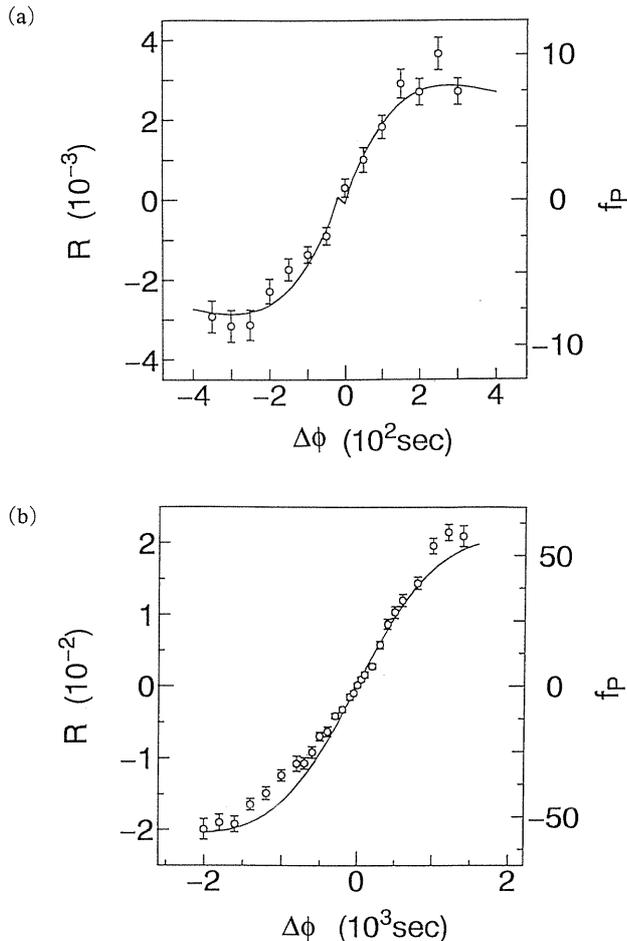


Figure 10. Flipping ratio ( $R$ ) and the polarization factor ( $f_p$ ) of the Fe 220 reflection. The double-crystal monochromator was fixed at an angle which gives (a) the 111 Bragg diffraction ( $\theta_B=13.2^\circ$ ) and (b) the 333 Bragg diffraction ( $\theta_B=43.3^\circ$ ). The open circles show observation and the solid line shows calculation.

て、ブラッグ角が $45^\circ$ に近い反射を与える結晶は直線偏光子として働く。いまの場合、シリコン333反射のブラッグ角が $45^\circ$ に近いため、シリコン結晶は分光素子としてだけでなく、直線偏光子としても働く。シリコン二結晶の消光比を計算すると520となる。さらに、この消光比をもとに二結晶後のX線の直線偏光度を見積もると0.9998という値が得られる。このときのフリップ比の測定結果を図10(b)に示す。フリップ比は、 $\Delta\phi=-2000''$ のときに最小値 $-2 \times 10^{-2}$ 、 $\Delta\phi=+2000''$ のときに最大値 $+2 \times 10^{-2}$ をとる。 $R=\pm 2 \times 10^{-2}$ に相当する偏光因子は $f_p=\pm 55$ である。前の結果と比較すると、フリップ比が一桁近く増加していることがわかる。

以上の結果は、移相子で放射光の偏光を制御することにより、X線磁気回折のフリップ比をエンハンスできること、さらに、直線偏光子と移相子とを組み合わせると偏光の制御を精密化することにより、飛躍的にフリップ比をエンハンスできることを示している。

## 5. おわりに

これまでX線透過型移相子の材料として、シリコン、ダイヤモンド、フッ化リチウムなどの単結晶が利用されてきた。現在、もっとも広く利用されているのはダイヤモンド結晶である。これは、完全に近い人工のダイヤモンド結晶を容易に入手することができるようになったおかげである。ダイヤモンド結晶を移相子に用いた場合、使用可能なエネルギーの下限は、ブラッグ反射が生じなくなる4 keVのあたりである。一方、使用可能なエネルギーの上限は、入手可能な結晶の厚さで決まり、現状では20 keVくらいである。ダイヤモンド結晶を直列に並べて実効的な厚さをかせぐという案もあるが、調整の手間が数倍かかってしまうという難がある。したがって、本稿で紹介したX線透過型移相子の利用可能範囲は大体4~20 keVくらいである。高エネルギー対応の別タイプのX線移相子も開発されており、それだと20~100 keVくらいの領域もカバーすることができる<sup>10-12,18</sup>。100 keV以上のエネルギーでは、X線移相子よりも楕円マルチポールウィグラーなどの偏光可変挿入型光源の方が有利になる。

理論上、X線透過型移相子として最高の性能を期待できるのがベリリウム結晶である。ベリリウム結晶の移相子が実用化されれば、ミラーなどの集光素子と組み合わせることが可能になり、放射光での透過型移相子の用途がさらに拡大するであろう。残念なことに、ベリリウムは完全に近い結晶を入手するのが難しく、また、安全上の問題もあるので、今のところ透過型移相子として実用化されるには至っていない。

X線透過型移相子が誕生してすでに7年近くが経過したが<sup>13</sup>、この間にX線透過型移相子は世界各地の放射光実験施設に普及した。特に、ESRF (ヨーロッパ)、APS (アメリカ)、SPring-8 (日本) といった第三世代の放射光実験施設で、最近盛んに利用されるようになってきている。本稿では、透過型移相子の応用例として、XMCDスペクトルの測定と非共鳴X線磁気回折について紹介したが、この他にも、X線フェラデー効果、磁性多層膜のX線磁気回折、磁気DAFS、X線偏光イメージング、X線偏光顕微鏡などの様々な応用がなされつつある。今後ますます、X線透過型移相子が放射光科学の発展に寄与することを期待したい。

最後に、平成9年度放射光学会若手奨励賞に選ばれたことは、たいへん名誉なことであり、また今回寄稿する機会に恵まれたことに感謝いたします。X線透過型移相子の開発は、東京大学工学部の菊田惺志教授、SPring-8の石川哲也博士と共同で行われました。また、XMCD測定実験は岡山大学理学部の圓山裕助教授、非共鳴X線磁気回折実験は姫路工業大学理学部の伊藤正久助教授と共同で行われました。心より感謝を申し上げます。

## 参考文献

- 1) A. Hojo, Y. Ohtsuki and S. Yanagawa: *J. Phys. Soc. Jpn.* **21**, 1047 (1966).
- 2) K. Hirano, T. Ishikawa and S. Kikuta: *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **336**, 343 (1993).
- 3) P. Skalicky and C. Malgrange: *Acta Cryst.* **A28**, 501 (1972).
- 4) S. Annaka, T. Suzuki and K. Onoue: *Acta Cryst.* **A36**, 151 (1980).
- 5) S. Annaka: *J. Phys. Soc. Jpn.* **51**, 1927 (1982).
- 6) O. Brümmer, Ch. Eisenschmidt and H. Höche: *Z. Naturforsch.* **37a**, 524 (1982).
- 7) O. Brümmer, Ch. Eisenschmidt and H. R. Höche: *Acta Cryst.* **A40**, 394 (1984).
- 8) B. W. Batterman: *Phys. Rev.* **B 45**, 12677 (1992).
- 9) J. A. Golovchenko, B. M. Kincaid, R. A. Levesque, A. E. Meixner and D. R. Kaplan: *Phys. Rev. Lett.* **57**, 202 (1986).
- 10) D. M. Mills: *Phys. Rev.* **B 36**, 6178 (1987).
- 11) D. M. Mills: *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **266**, 531 (1988).
- 12) C. J. Yahnke, G. Srajer, D. R. Haefner, D. M. Mills and L. Assoufid: *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **347**, 128 (1994).
- 13) K. Hirano, K. Izumi, T. Ishikawa, S. Annaka and S. Kikuta: *Jpn. J. Appl. Phys.* **30**, L407 (1991).
- 14) T. Ishikawa, K. Hirano, K. Kanzaki and S. Kikuta: *Rev. Sci. Instrum.* **63**, 1098 (1992).
- 15) K. Hirano, K. Kanzaki, M. Mikami, M. Miura, K. Tamasaku, T. Ishikawa and S. Kikuta: *J. Appl. Cryst.* **25**, 531 (1992).
- 16) T. Ishikawa, K. Hirano and S. Kikuta: *J. Appl. Cryst.* **24**, 982 (1991).
- 17) K. Hirano, T. Ishikawa, S. Koreeda, K. Fuchigami, K. Kanzaki and S. Kikuta: *Jpn. J. Appl. Phys.* **31**, L1209 (1992).
- 18) K. Hirano, T. Ishikawa, I. Nakamura, M. Mizutani and S. Kikuta: *Jpn. J. Appl. Phys.* **33**, L689 (1994).
- 19) K. Hirano, T. Ishikawa and S. Kikuta: *Rev. Sci. Instrum.* **66**, 1604 (1995).
- 20) 菊田 惺志 : X線回折・散乱技術上, 東京大学出版会 (1992).
- 21) K. Hirano: *Jpn. J. Appl. Phys.* **36**, L637 (1997).
- 22) T. Ishikawa: *Rev. Sci. Instrum.* **60**, 2058 (1989).
- 23) C. Giles, C. Malgrange, J. Goulon, F. Bergevin and C. Vettier: *J. Appl. Cryst.* **27**, 232 (1994).
- 24) K. Hirano and H. Maruyama: *Jpn. J. Appl. Phys.* **36**, L1272 (1997).
- 25) H. Maruyama, A. Koizumi, K. Kobayashi and H. Yamazaki: *Jpn. J. Appl. Phys.* **32**, 290 (1993).
- 26) S. W. Lovesey and S. P. Collins: *X-ray Scattering and Absorption by Magnetic Materials* (Oxford, Clarendon, 1996).
- 27) 伊藤正久 : 日本結晶学会誌 **39**, 60 (1997).
- 28) M. Ito and K. Hirano: *J. Phys.: Condens. Matter* **9**, L613 (1997).